

Изучение влияния состава окислительно-восстановительной смеси на ход и результаты пиролиза при синтезе сложного оксида $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$

Мельникова А.А.¹

Научный руководитель: Филонова Е.А.², к.х.н., доцент, доцент кафедры физической и неорганической химии

Институт естественных наук и математики, Уральский федеральный университет
¹anna.melnikova13@yandex.ru; ²elena.filonova@urfu.ru

Твердооксидные топливные элементы (ТОТЭ) являются перспективными электрохимическими устройствами для непосредственного превращения энергии топлива в электрическую энергию. Традиционно используемый в ТОТЭ кислород-проводящий твёрдый электролит на основе Y-стабилизированного диоксида циркония YSZ наиболее часто применяется совместно с металлокерамическим анодом Ni-YSZ. К недостаткам анода из Ni-кермета при работе ТОТЭ следует отнести его деградацию в среде серосодержащих топливных газов, обусловленную зауглероживанием и отравлением серой. Поэтому поиск материалов для анодов ТОТЭ, являющихся толерантными к отравлению сажей и серой топливных газов остается весьма актуальным. В качестве альтернативных материалов анодов для среднетемпературных ТОТЭ, использующих в качестве электролита Sr, Mg-допированный LaGaO_3 , предложено использовать сложные оксиды со структурой двойного перовскита на основе $\text{Sr}_2\text{NiMoO}_6$, частично замещенные по Ni- подрешетке. Показано [1, 2], что оптимальным набором функциональных характеристик обладают составы, замещенные на 25-30 моль % магнием. Установлено, что фазовый состав подобных сложнооксидных материалов и их физико-химические свойства, определяемые термодинамическими условиям синтеза, варьируются и зачастую не воспроизводятся. В связи с чем перед настоящей работой была поставлена задача по нахождению оптимальных условий синтеза однофазных образцов $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$ путем изучения влияния состава пиролитической смеси на фазовый состав финишного продукта.

Синтез $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$ проводили методом пиролиза органическо-солевых композиций. Глицин (или глицерин) использовали в качестве органического топлива и комплексообразующего агента. Для активации процесса горения использовали нитрат аммония NH_4NO_3 как добавку с высоким экзотермическим эффектом разложения. Для определения оптимальных условий синтеза однофазных образцов синтезировали ряд образцов $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$ при варьировании состава окислительно-восстановительной смеси. Состав пиролитической смеси задавали при помощи параметров ϕ и R , где стехиометрический коэффициент ϕ – это соотношение между общей валентностью топлива и общей валентностью окислителей (нитратов), а R – массовое соотношение между количеством нитрата аммония и органического топлива [3]. Параметры ϕ и R варьировали в пределах 1.0–3.0 и 0.3–1.0 соответственно.

В качестве исходных веществ для синтеза $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$ использовали SrCO_3 , MgO , $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$. Стехиометрические количества SrCO_3 , MgO растворяли в разбавленной HNO_3 , $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ растворяли в дистиллированной воде. Полученный раствор нагревали в течение 12 часов при 348 К, после чего добавляли рассчитанные количества NH_4NO_3 и глицина (или глицерина) и упаривали раствор при 523 К. Температуру во время пиролиза, измеряли с помощью инфракрасного термометра Testo 835. Полученные порошки отжигали при температурах 1173 – 1373 К с промежуточными перетираниями. После каждого шага термообработки проводили рентгенофазовую аттестацию порошковых образцов на дифрактометре ДРОН-6 в $\text{Cu K}\alpha$ -излучении.

На основании полученных данных подобрана оптимальная методика синтеза исследуемого оксида. Сделан вывод о влиянии вида органического топлива и добавки NH_4NO_3 на ход и результаты пиролиза при синтезе сложного оксида состава $\text{Sr}_2\text{Ni}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{MoO}_6$.

Литература

1. Xie Z., Zhao H., Du Z., et al. *Phys. Chem.* **118**, 18853–18860 (2014)
2. Filonova E.A., Dmitriev A.S., Pikalova P.S., et al. *Solid State Ionics* **262**, 365-369 (2014)
3. Dager P.K., Chanquía C.M., Mogni L., et al. *Materials Letters* **141**, 248-251 (2015)